# This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

# **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

```
DIALOG(R) File 351: Derwent WPI
(c) 2002 Thomson Derwent. All rts. reserv.
009452758
             **Image available**
WPI Acc No: 1993-146283/ 199318
Related WPI Acc No: 1993-056071
XRAM Acc No: C93-065208
XRPX Acc No: N93-111796
  Organic thin film electroluminescent element - consists of thin film
  comprising organic charge carrier transport material and EL material held
  between transparent electrodes
Patent Assignee: NEC CORP (NIDE )
Number of Countries: 001 Number of Patents: 002
Patent Family:
Patent No
              Kind
                     Date
                             Applicat No
                                            Kind
                                                   Date
                                                            Week
JP 5078655
                   19930330
                             JP 90340900
                                                           199318
               Α
                                             Α
                                                 19901130
JP 3005909
               B2 20000207
                             JP 90340900
                                             Α
                                                 19901130
                                                           200012
Priority Applications (No Type Date): JP 90306556 A 19901113; JP 89318797 A
  19891211; JP 89331066 A 19891222; JP 90160117 A 19900619; JP 90279183 A
  19901019
Patent Details:
Patent No Kind Lan Pg
                         Main IPC
                                     Filing Notes
JP 5078655
             Ā
                    13 C09K-011/06
JP 3005909
              B2
                    11 H05B-033/14
                                     Previous Publ. patent JP 5078655
Abstract (Basic): JP 5078655 A
        Organic thin film electroluminescent element consists of pair of
    electrodes at least one of which is transparent, and thin film held
    between two electrodes of organic electroluminescent material (A) which
    is mixt. of organic charge carrier transport material (A1) and organic
    electroluminescent material (A2).
         (A2) may be selected from the gps. of pyrane derivs. of formula
    (I), coumarine derivs. or their salts or formula (II), cyanine type
    cpds. of formula (III), xanthene_cpds. of formula (IV) or (V).
         In formula (I), X = O or S, RL = opt. 2=(4-substd.)aminostyryl or
    2-(9-durorydiyl)ethynyl, aryl, R2 = alkyl, aryl or
    2-(9-durorydiyl)ethynyl. In formula (II), R3 = H, carboxyl, alkoxy,
    alkoxycarbonyl, alkanoyl, cyano, aryl, heterocyclic aromatic cpd. qp.,
    R4 = H, alkyl, haloalkyl, carboxyl, alkanoyl, alkoxycarbonyl, R5 = HG
    or alkyl, R6 = opt. substd. amino gp., R7 = H or may form a condensed
    ring with amino gp. contg. R6, R3 and R4 may form a condensed carbon
    ring. In formula (III), R1 = H alkyl or halogen, two may make a
    neopentylene gp. R2 and R3 denote heterocyclic cpd. residue contq. at
    least nitrogen atom and nitrogen atom in either R2 or R3 has positive
    charge. In formulas (IV) and (V), R11-R17 (are each) = H, alkyl, aryl,
    substd. alkyl, substd. aryl, allyl, alkoxy, hydroxyl, alkoxycarbonyl,
    carbonyl, sulphonyl, nitro or halogen, R21-R31 (are each) = H, alkyl,
    aryl, substd. alkyl, substd. aryl, allyl, alkoxy, hydroxyl,
    alkoxycarbonyl, carboxyl, sulphonyl, nitro or halogen.
         (A) may be selected from the gps. of tert diamine cpds. of formula
    (IX), phthalocyanine type cpds. of formula (X) or (XI). In formula
    (XI), R1-R4 (ar each) = H, alkyl, aryl, substd. alkyl or substd. aryl,
    R5 = alkylene. In formula (X) or (XI), R1-R6 (are each) = H, hydroxyl,
    phenyl, alkyl or sulphonic acid salt, R17-R32 (ar each) = H, phenyl,
    alkyl or sulphnic acid salt.
         USE/ADVANTAGE - The thin film organic electroluminescent element
    gives full-colour elements from blue to red at low voltage. It is
    suitable for mfg. flat illuminants and displays.
        Dwg.0/5
Title Terms: ORGANIC; THIN; FILM; ELECTROLUMINESCENT; ELEMENT; CONSIST;
  THIN; FILM; COMPRISE; ORGANIC; CHARGE; CARRY; TRANSPORT; MATERIAL;
  ELECTROLUMINESCENT; MATERIAL; HELD; TRANSPARENT; ELECTRODE
Derwent Class: E13; L03; U11; U14
International Patent Class (Main): C09K-011/06; H05B-033/14
International Patent Class (Additional): H05B-033/14
File Segment: CPI; EPI
```

```
Manual Codes (CPI/A-N): E06-D01; E06-D02; E06-D13; E06-E01; E06-F01;
  E06-F05; E24-A; L03-H04A
Manual Codes (EPI/S-X): U11-A15; U14-H01A; U14-J02
Chemical Fragment Codes (M3):
  *07* G001 G002 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G021 G022 G029 G040 G100
       G111 G112 G113 G221 G299 H1 H100 H101 H102 H103 H141 H142 H181 H182
       L640 M121 M122 M124 M129 M143 M149 M210 M211 M212 M213 M214 M215
       M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M273 M280
       M281 M282 M283 M311 M312 M313 M314 M315 M316 M321 M331 M332 M333
       M340 M342 M383 M391 M414 M416 M510 M520 M530 M531 M532 M533 M540
       M620 M782 M903 M904 Q454 R043 9318-B5507-M
  *08* A960 C710 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 D000 D011 D012 D013
       D014 D015 D019 E350 G010 G019 G100 H401 H402 H403 H404 H405 H421
       H422 H423 H424 K431 K499 M113 M119 M210 M211 M212 M213 M214 M215
       M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M280
       M281 M282 M283 M411 M412 M417 M511 M520 M530 M531 M532 M533 M540
       M630 M782 M903 M904 Q454 R043 9318-B5508-M 9318-B5509-M
  *09* A960 C710 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 D012 D021 D023 D024
       D621 H4 H401 H441 H494 H521 H541 H542 H608 H609 H621 H641 H642 L941
       M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225
       M226 M231 M232 M233 M240 M272 M280 M281 M282 M283 M320 M411 M417
       M511 M520 M530 M540 M630 M782 M903 M904 Q454 R043 9318-B5510-M
  *10* D013 D014 D021 D029 E160 G001 G002 G010 G011 G012 G013 G019 G020
       G021 G022 G029 G040 G100 G111 G112 G221 G299 H100 H101 H102 H103
       H141 H142 H211 H541 H542 J011 J012 J013 J341 J342 J371 J5 J522 K620
       K640 K850 L9 M112 M114 M119 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220
      M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M262 M272 M273
      M280 M281 M282 M283 M320 M412 M511 M520 M530 M531 M532 M533 M540
      M782 M903 M904 Q454 R043 9318-B5511-M 03531
  *11* G001 G002 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G021 G022 G029 G040 G100
       G111 G112 G113 G221 G299 H1 H103 H141 H7 H721 M1 M121 M122 M124 M129
      M132 M133 M143 M150 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221
      M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M273 M280 M281 M282 M312
      M321 M332 M342 M343 M414 M510 M520 M532 M533 M540 M782 M903 M904
      Q454 R043 9318-B5512-M 03531
  *12* D010 D020 D040 G001 G010 G011 G012 G013 G019 G100 H1 H103 H141 H7
      H721 M1 M121 M123 M129 M133 M143 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216
      M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M273 M280 M281
      M282 M312 M321 M332 M342 M412 M511 M520 M531 M532 M533 M540 M782
      M903 M904 Q454 R043 9318-B5513-M 03531
  *13* G010 G017 G019 G020 G021 G029 G040 G100 G112 G113 G221 G299 H541
      H542 H543 H600 H608 H609 H641 H642 H643 H7 H720 K0 L9 L952 L999 M1
      M111 M112 M119 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222
      M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M280 M281 M282 M283
      M320 M414 M510 M520 M532 M533 M540 M782 M903 M904 Q454 R043
       9318-B5514-M 03531
  *14* G001 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G029 G111 G112 G450 J0 J012 J2
      J232 M122 M129 M136 M139 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220
      M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M272 M280 M281 M282
      M320 M414 M510 M520 M531 M532 M533 M540 M782 M903 M904 Q454 R043
      9318-B5515-M 03531
Chemical Fragment Codes (M4):
  *01* C316 D011 D022 D023 D024 D025 D029 D210 G001 G002 G010 G011 G012
      G013 G019 G020 G021 G022 G029 G040 G100 G111 G112 G113 G221 G299
      H100 H102 H103 H141 H321 H341 H342 H343 H381 H382 H383 H401 H402
      H403 H404 H405 H421 H441 H442 H443 H444 H521 H541 H542 H543 H600
      H607 H608 H609 H621 H641 H642 H643 H716 H721 H722 H723 J011 J012
      J013 J014 J111 J131 J132 J133 J211 J231 J232 J561 K130 K199 K351
      K352 K353 K399 K431 K499 K610 K699 K810 K830 K840 K850 K899 L355
      L410 L462 L499 L532 L599 L722 M112 M113 M114 M115 M119 M121 M122
      M124 M129 M143 M149 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221
      M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M273 M280 M281
      M282 M283 M320 M412 M511 M520 M530 M531 M532 M533 M540 M782 M903
      M904 Q454 Q613 R043 9318-B5501-M 03531
 *02* F012 F014 F016 F121 F220 G010 G011 G015 G019 G020 G021 G029 G040
      G100 G111 G221 G299 H100 H141 H7 H720 H721 K0 L1 L145 L199 M113 M115
```

M119 M123 M133 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222

```
M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M280 M281 M282 M311 M312
       M321 M332 M342 M344 M372 M391 M413 M510 M521 M530 M531 M532 M540
       M782 M903 M904 Q454 Q613 R043 9318-B5502-M 03531
  *03* D011 D012 D013 D014 D019 D021 D022 D023 D040 D120 F010 F020 G010
       G020 G021 G040 G100 G221 H100 H102 H103 H141 H181 H201 H521 H600
       H608 H609 H681 H682 H683 H684 H685 H686 H689 J011 J012 J111 J112
       J211 J212 J5 J521 J581 J582 L142 L9 L942 M113 M115 M116 M210 M211
       M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231
       M232 M233 M240 M262 M272 M273 M280 M281 M282 M311 M312 M313 M314
       M315 M316 M320 M321 M331 M332 M333 M334 M340 M342 M343 M344 M353
       M391 M412 M511 M520 M521 M530 M531 M540 M782 M903 M904 Q454 Q613
       R043 9318-B5503-M 03531
  *04* D010 D019 D020 D029 D040 D049 F010 F019 F020 F021 F029 H600 H608
       H683 M126 M135 M280 M320 M412 M413 M510 M511 M512 M520 M521 M522
       M530 M540 M640 M782 M903 M904 Q454 Q613 R043 9318-B5504-M 03531
  *05* B634 C108 C216 D014 D025 D120 D320 F012 F013 F014 F015 F016 F121
       F123 F220 G001 G002 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G021 G022 G029
       G040 G100 G111 G112 G113 G221 G299 H100 H101 H102 H103 H121 H122
       H123 H141 H142 H143 H321 H322 H323 H341 H342 H343 H401 H402 H403
       H404 H441 H442 H443 H444 H521 H522 H523 H541 H542 H543 H600 H607
       H608 H609 H621 H622 H623 H641 H642 H643 H721 H722 H723 J011 J012
       J013 J014 J111 J112 J113 J131 J132 J133 J211 J212 J231 J232 K0 K431
       K499 L532 L599 L7 L730 L930 L942 L943 L999 M112 M113 M114 M115 M119
      M122 M123 M124 M125 M129 M132 M135 M139 M150 M210 M211 M212 M213
      M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233
      M240 M262 M272 M273 M280 M281 M282 M283 M311 M312 M313 M314 M315
      M316 M320 M321 M322 M323 M331 M332 M333 M334 M340 M342 M411 M412
      M413 M510 M511 M520 M521 M530 M531 M532 M533 M540 M782 M903 M904
       Q454 Q613 R043 9318-B5505-M 03531 00288 08117
  *06* G020 G023 G430 H4 H401 H402 H403 H441 H442 H443 H481 H600 H641 H8
       J011 J231 J561 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222
      M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M280 M281 M311 M312
      M313 M314 M315 M316 M320 M321 M331 M332 M333 M340 M342 M373 M391
      M414 M510 M520 M531 M540 M782 M903 M904 Q454 Q613 R043 9318-B5506-M
       03531 00288 08117 05257
Ring Index Numbers: 03531; 00288; 08117; 05257
Generic Compound Numbers: 9318-B5507-M; 9318-B5508-M; 9318-B5509-M;
  9318-B5510-M; 9318-B5511-M; 9318-B5512-M; 9318-B5513-M; 9318-B5514-M;
  9318-B5515-M; 9318-B5501-M; 9318-B5502-M; 9318-B5503-M; 9318-B5504-M;
```

9318-B5505-M; 9318-B5506-M

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19)日本国特許庁 (JP)

# (12) 公開特許公報(A)

FΙ

(11)特許出願公開番号

特開平5-78655

(43)公開日 平成5年(1993)3月30日

(51)Int.Cl.<sup>5</sup>

識別記号

厅内整理番号

C09K 11/06

Z 6917-4H

技術表示箇所

H 0 5 B 33/14

8815-3K

# 審査請求 未請求 請求項の数15(全 13 頁)

(21)出願番号	特顯平2-340900	(71)出願人 999999999
(22)出顧日	平成 2年(1990)11月30日	日本電気株式会社 東京都港区芝 5 丁目 7 番 1 号 (72)発明者 宇津木 功二
(32)優先日 (33)優先権主張国	特願平1-318797 平1(1989)12月11日	東京都港区芝 5 丁目 7 番 1 号 日本電気株
	日本 (JP)	式会社内 (72)発明者 長幡 絵美
(31)優先権主張番号 (32)優先日	特顯平2-160117 平 2 (1990) 6 月19日	東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株式会社内
(33)優先権主張協 (31)優先権主張番号	日本(JP) 特願平1-331066	(74)代理人 弁理士 内原 晋
(32)優先日 (33)優先権主張国	平1(1989)12月22日	
(35) 使无偿土状因	日本(JP)	最終頁に続く

# (54)【発明の名称】 有機薄膜EL素子

#### (57)【要約】

電子出願以前の出願であるので

要約・選択図及び出願人の識別番号は存在しない。

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも一方が透明な一対の電極間に 少なく

とも有機発光体薄膜層を有する有機薄膜വ素子に おいて、有機発光体薄膜層の成分が有機電荷輸送 性材料と有機発光材料の混合物からなることを特 徴とする有機薄膜വ素子。

【請求項2】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は、

#### 一般式;

(式中、Xは酸素原子または硫黄原子、R1は2-(4-置換もしくは未置換アミノスチリル)基または2-(9-ジュロリジイル)エチニル基、R2はアルキル基、ア

リール基または2-(9-ジュロリジイル) エチニル基を 示す。)

で示されるピラン誘導体である請求項(1)に記載の 有機薄膜吐素子。

【請求項3】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は、

#### **一股**式;

(式中、R³は水素原子、カルボキシル基、アルコキシル基、アルコキシカルボニル基、アルカノイル基、シアノ基、アリール基または複素環式芳香族化合物、R⁴は水素原子、アルキル基、ハロアルキル基、カルボキシル基、アルカノイル基またはアルコキシカルボニル基、R⁵は水素原子またはアルキル基、R⁶は置換もしくは未置換のアミノ基、Rワは水素原子またはアミノ基を含んだR⁶と縮合環を

形成してもよい。また、R³とR⁴は互いに縮合炭素 環状体を形成してもよい。)

で示されるクマリン誘導体またはその塩である請求項(1)に記載の有機薄膜L素子。

【請求項4】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は、

#### 一般式;

$$\begin{array}{ccc}
& & & & & \\
& & & & & \\
R^{2} & = CH & & & & \\
& & & & & \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{cccc}
& & & & & \\
& & & & \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{ccccc}
& & & & \\
& & & & \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{ccccc}
& & & & \\
& & & & \\
\end{array}$$

(式中、nは0~3の整数であり、R<sup>1</sup>は水素原子、アルキル基またはハロゲン原子、あるいはR<sup>1</sup>同士でネオペンチレン基を形成してもよく、R<sup>2</sup>およびR<sup>3</sup>は少なくとも窒素原子を含む複素環化合物残基を示し、かつR<sup>2</sup>とR<sup>3</sup>のどちらか一方の複素環に含まれる窒素原子は正の電荷を持っている)

で示されるシアニン系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜吐素子。

【請求項5】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は一

#### 般式:

**(I)** 

20

(式中、R11~R17はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、アルキル基、アリール基、 置換アルキル基、置換アリール基、アリル基、ア ルコキシ基、ヒドロキシル基、アルコキシカルボ ニル基、カルボキシル基、スルホニル基、ニトロ 基又はハロゲン原子)または

30 (11)

(式中、R21~R31はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、アルキル基、アリール基、

40 置換アルキル基、置換アリール基、アリル基、ア ルコキシ基、ヒドロキシル基、アルコキシカルボ ニル基、カルボキシル基、スルホニル基、ニトロ 基又はハロゲン原子)

で示されるキサンテン系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜に素子。

【請求項6】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は一

般式;

**(I)** 

10

(式中、R1~R5はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、アルキル基、アリール基、アラルキル基、置換アリール基、置換アリール基、置換アラルキル基、アリル基、アルコキシ基、ヒドロキシル基、アルコキシカルボニル基、カルボ

キシル基、スルホエル基、ニトロ基、アミノ基、イミド基又はハロゲン原子)、 X1は、酸素、硫黄又はセレン、 Y1は、過塩素酸、スルホン酸。

又は、フルオロほう酸、または:

$$\begin{array}{c|c}
R_{12} & \oplus & R_6 \\
R_{10} & X_2 & R_6 \\
R_{10} & R_9 & R_8
\end{array}$$

(式中、R6~R12はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、アルキル基、アリール基、アラルキル基、置換アルキル基、置換アリール基、置換アラルキル基、アリル基、アルコキシ基、ヒドロキシル基、アルコキシカルボニル基、カルボニル基、スルホニル基、ニトロ基、アミノ基、イミド基又はハロゲン原子、

X2は、酸素、硫黄又はセレン、

Y2は、過塩素酸、スルホン酸、又は、フルオロほう酸で示されるピリリウム系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項7】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は一

般式:

$$O = \underbrace{\begin{array}{c} R_3 \\ R_1 \end{array}}$$

(式中、R1は、ヒドロキシル基、アルキル基、ヒドロキシアルキル基、

又は、アルコキシカルボニル基、

R1は、ヒドロキシル基又はハロゲン原子、

R3は、ヒドロキシル基又は-O-M+、ただし

Mは、ナトリウム、カリウム、リチウム又はアンモ

ニウム)

で示されるオキソベンゾアントラセン系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL案子。

【請求項8】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材

4

料は一般式;

$$R_1 \searrow N - R_5 - N \nearrow R_3$$

$$R_2 \searrow N - R_5 - N \nearrow R_3$$

(式中、R1~R1は同一もしくは異なる基であって、 水素原子、アルキル基、アリール基、置換アルキ ル基、または置換アリール基、R5はアルキレン基) で示される第3級ジアミン系化合物である請求項(1) に記載の有機薄膜肛素子。

【請求項9】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材

料は一般式;

(1)

20

30

(式中、Ri~R6はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、水酸基、フェニル基、アルキル基、又はスルホン酸塩)または、

(11)

50

10

(式中、R:7~R:2はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、フェニル基、アルキル基、 又はスルホン酸塩、 Mは金属、

で示されるフタロシアニン系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項10】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷 輸送性

材料は一般式;

$$\begin{array}{c|c}
R_2 & & & \\
R_3 & & & \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
C & \\
 & \\
 & \\
0 & \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
N - R_1 \\
0 & \\
\end{array}$$

(式中、R1、R2およびR3はそれぞれ同一でも異なっていてもよく、水素原子、アルキル基、アリール基、置換アルキル基、置換アリール基、アルコキシル基、フェニル基、置換フェニル基、アミノ基、アシルアミノ基からなる群から選ばれる)で示されるナフタルイミド系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項11】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷 輸送性

材料は一般式;

(I)

$$\begin{array}{c|c}
R_2 \\
0 \\
\hline
\\
R_1
\end{array}$$

(式中、Mは金属原子、R1~R3は同一でも相異なっ

てもよく、水素原子、アルキル基、アルコキシル 基またはハロゲン基からなる群から選ばれ、nは1 から3の整数である) または、

(II)

$$\begin{array}{c|c} R_2 \\ S & \\ \hline \\ R_1 \\ \end{array}$$

(式中、Mは金属原子、R1~R3は同一でも相異なっていてもよく、水素原子、アルキル基、アルコキ

シル基またはハロゲン基からなる群から選ばれ、nは2または3の整数である)

で示されるキノリノール金属錯体である請求項(1) に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項12】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷 20 輸送性

材料は一般式、

$$\begin{array}{c}
R1 \\
C = CH - R3 - N
\end{array}$$
R5

(式中、R1は水素原子、フェニル基、置換フェニル基、ナフチル基、置換ナフチル基、R2はフェニル基、置換フェニル基、 R3はフェニル基、 T4はアルキル基、フェニル基、 T5はアルキル基、フェニル基、 T4はアルキル基、フェニル基、 T4はアルキル基、フェニル基、 T4はアルキル基、フェニル基、 T4はアルキル基、フェニル基、 T4はアルキル基、フェニル基、 T4はアルキル基、フェニル基、 T4はアルキル基、フェニル基、 T4はアルキル基、フェニル基、 T4はアルキル基のよる。)

で示される第3級アミン誘導体である請求項(1)に記載の有機薄膜吐素子。

【請求項13】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷 輸送材

料は一般式、

$$A - CH = CH - \bigcirc N \setminus_{R_V}^{R_1}$$

(式中、Aはベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、インドールおよびキノリンからなる群から選ばれる。また、R1とR2とフェニル基、置換フェニル基およびアルキル基からなる群から選ばれる。)

で示されるスチリル系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜肛素子。

50 【請求項14】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷

輸送材 料は一般式、

(式中、R1~R1はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、アルキル基、アリル基、アルコキシル基またはハロゲン原子を示す)で表されるジフェノキノン誘導体である請求項(1)に記載の有機薄膜吐来子、

【請求項15】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷 輸送材

料は一般式、

(式中、Rはアルキル基、アルコキシル基、フェニル基および置換フェニル基からなる群から選ばれる。)で示される3,9~ペリレンジカルボン酸エステルである請求項(1)に記載の有機薄膜肛案子。

### 【発明の詳細な説明】

#### (産業上の利用分野)

本発明は平面光源やディスプレイに使用される有機薄膜吐素子に関するものである。

#### (従来の技術)

有機蛍光物質を有機発光体薄膜層としたEL)電界発光)素子は、安価な大面積フルカラー表示素子を実現するものとして注目を集めている(電子情報通信学会技術報告、第89巻、No.106、49ページ、1989年)。報告によると、第5図に示すように強い蛍光を発する有機色素を有機発光体薄膜層54に使用し、青、緑、赤色の明るい発光を得ている。これは、薄膜状で強い蛍光を発し、ピンホール欠陥の少ない有機色素を用いたことで、高輝度なフルカラー表示を実現できたと考えられている。(発明が解決しようとする課題)

前述の有機色素を用いた有機薄膜印素子は、 骨、緑、赤の発光を示す。しかし、従来より知られているように、有機色素の中には溶液状では非常に強い蛍光を示しながら、薄膜状では極端に蛍 光が弱くなったり、全く蛍光を示さないものも多くあって、選択できる色素材料の数は限られ、高 輝度なフルカラー表示有機薄膜印象子実現のため にはまだ十分ではない。 本発明は以上のべたような従来の事情に対処してなされたもので、これまで薄膜状では蛍光が弱すぎて利用できなかった有機色素を用いることもできる高輝度なフルカラーの有機薄膜EL素子を提供することを目的とする。

8

#### (課題を解決するための手段)

本発明者は、低電圧駆動で高輝度なフルカラーの有機薄膜吐素子を得るべく鋭意研究の結果、有 機発光体薄膜層の有機発光材料を有機電荷輸送性 材料中に分散させることで濃度消光が防止され、 有機色素の選択の幅が広がって特性の優れた有機 薄膜吐素子が得られることを見出し、本発明に 至った。

すなわち本発明は、少なくとも一方が透明な一対の電極間に少なくとも有機発光体薄膜層を有する有機薄膜吐素子において、有機発光体薄膜層の成分が有機電荷輸送性材料と有機発光材料の混合物からなることを特徴とする有機薄膜吐素子である。

本発明の有機薄膜LL素子としては、第1図のようにガラス基板11上に透明電極12と背面電極15との間に有機発光休薄膜層14のみが形成されたものの他、第2図のように有機正孔注入層23と有機発光体薄膜層24が形成されたもの、第3のように有機発光体薄膜層34と有機電子注入層36が形成されたもの、および第4図のように有機正孔注入層43、有機発光体薄膜層44、有機電子注入層46が形成されあ30ものが挙げられる。

なお、透明電極としては通常用いられるものであればいずれでもよく、例えばITO以外には SnΩ:Sb、ZnO:AlやAuなどが挙げられる。背面電極にはIn、Mg、Ag、Mg:In、Mg:Agなどが使われる。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項(2)のピラン誘導体の具体的な例としては、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-40、[2-(9-ジュロリジイル)エチニル]-4H-ピラン、4-(ジシアノメチレン)-2-フェニル-6[2-(9-ジュロリジイ

ル)エチニル}-4H-ピラン、4-(ジシアノメチレン)-2, 6-{2-(9-ジュロイジイル)エチニル}-4H-ピラン、4-(ジ シアノメチレン)-2-メチル-6-{2-(9-ジュロリジイル) エチニル}-4H-チオピランなどがあるがこの限りで はない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項 (3)のクマリン誘導体の具体的な例としては、7-ジ 50 エチルアミノ-4-メチルクマリン、4,6-ジメチル-7エチルアミノクマリン、3-(2'-ベンゾチアゾイル)-7-ジエチルアミノクマリン、3-(2'-ベンズイミダゾイル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン、7-アミノ-3-フェニルクマリン、3-(2'-N-メチルベンズイミダゾイル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン、7-ジエチルアミノ-4-トリフルオロメチルクマリン、2,3,5,6-1H,4H-テトラヒドロ-8-メチルキノルアジノ(9,9a,1-gh)クマリン、7-アミノ-4-メチルクマリン、7-ジメチルアミノシクロペンタ(C)クマリン、7-ジメチルアミノ-4-トリフルオロメチルクマリン、1,2,4,5,3H,6H,10H-テロラヒドロ-8-トリフルオロメチル(1)ベンゾピラノ(9,9a,1-gh)キノリジン-10-オン、4-

メチル-7-(スルホメチルアミノ)クマリンナトルム 塩、7-エチルアミノ-6-メチル-4-トリフルオロメチ ルクマリン、7-ジメチルアミノ-4-メチルクマリ ン、1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ-カルボエ トキシ(1)-ベンゾピラノ(9,9a,1-gh)キノリジノ-10-オン、9-アセチル-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒ ドロ(1)ペンゾピラノ(9,9a,1-gh)キノリジノ-10-オ ン、9-シアノ-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ (1)ベンゾピラノ[9,9a,1-sh]キノリジノ-10-オン、9-(t-ブトキシカルボニル)-1,2,4,5,3H,6H,10H-テト ラヒドロ(1)ベンゾピラノ(9,9a,1-gh)キノリジノ-10-オン、4-メチルピペリジノ(3,2-g)クマリン、4-トリ フルオロメチルピペリジノ(3,2-g)クマリン、9-カル ボキシ-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ[1]ベン ゾピラノ[9,9a,1-sh]キノリジノ-10-オン、N-エチ ルー4-トリフルオロメチルピペリジノ(3,2-g)クマリ ン、2.3,6,7-テトラヒドロ-11-オキソ-18,58,118-(1)ペンゾピラノ(6,7,8-ij)-キノリジン-10-カルボン 酸などがあるがこの限りではない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項 (4)のシアニン誘導体の具体的な例としては、3.3'-(ジ-n-プロピル)-2,2'-オキサカルボシアニンアイオ ダイド、3,3'-)ジ-n-ペンチル)-2,2'-オキサカルボシ アニンアイオダイド、3,3'-(ジ-n-ヘキシル)-2,2'-オ キサカルボシアニンアイオダイド、3,3'-(ジ-n-プロ ピル)-2,2'-オキサカルボシアニンアイオダイド、3, 3'-(ジ-n-プロピル)-2,2'-チアジカルボシアニンアイ オダイド、1-カルボキシエチル-3'-エチル-4,2'-キノ-チアジカルボシアニンアイオダイド、1-1'-ジエチ ルー3,3,3',3'ーテトラメチルー2,2'ーインドトリカルボシ アニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-オキサシ アニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-チアシア ニンアイオダイド、1,3,3,1',3',3'-ヘキサメチル-2, 2'-インドシアニンパークロレート、1.3'-ジエチルー 2,2'-キノーチアシアニンアイオダイド、1,3'-ジエチ ルー2,2'-キノーセレナシアニンアイオダイド、1,1'-ジ

エチル-2,2'-キノシアニンアイオダイド、1,1'-ジェ チル-2,4'-キノシアニンアイオダイド、3,3'-ジェ チ

10

ルー2.2'-チアゾリノカルボシアニンアイオダイド、

3.3'-ジエチル-2.2'-オキサカルボシアニンアイオダ イド、3.3,9'-トリエチル-5,5'-ジフェニル-2,2'-オキ サカルボシアニンアイオダイド、1.3.1'.3'-テトラ エチル-5,6,5',6'-テトラクロロ-2,2'-イミダカルボシ 10 アニンアイオダイド、1,3,3,1',3',3'-ヘキサメチルー 2.2'-インドカルボシアニンアイオダイド、3.3',9-トリエチル-2,2'-チアカルボシアニンアイオダイ ド、3,3'-ジエチルー9-メチルーチアカルボシアニンア イオダイド、アンハイドロ-3,3'-ジスルホプロピル-**チメチルセレナカルボシアニンハイドロキサイドト** リエチルアミン塩、3,3'-ジエチル-4,4'-ジメチル-2、 2'-チアゾロカルボシアニンアイオダイド、3.3'-ジ エチル-2,2'-チアカルボシアニンアイオダイド、ア ンハイドロ-3.3'-ジスルホプロピルチアカルボシア 20 ニンハイドロキサイドトリエチルアミン塩、3,3'-ジエチル-2,2'-セレナカルボシアニンアイオダイ ド、アンハイドロ-3,3'-ジスルホプロピル-9-メチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベンゾ) チアカルボシアニンハイド ロキサイドトリエチルアミン塩、3,3'-ジエチル-9-メチル-2,2'-(6,7,6',7'-ジベンゾ)チアカルボシアニ

ンアイオダイド、3,3',9-トリエチル-2,2'-(4,5,4', 5'-ジベンゾ)チアカルボシアニンブロマイド、1.3、 3.1',3',3'-ヘキサメチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベンゾ)-30 インドカルボシアニンアイオダイド、3.3'-ジエチ ルー2,2'-(6,7,6',7'-ジベンゾ)チアカルボシアニンア イオダイド、1,3'-ジエチル-4,2'-キノキサカルポシ アニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-(4,5,4', 5'-ジベンゾ)チアカルボシアニンアイオダイド、1、 1'-ジエチル-2,2'-キノカルボシアニンアイオダイ ド、1,3'-ジエチル-4,2'-キノチアカルボシアニンア イオダイド、1,1'-ジエチル-2,4'-キノカルボシアニ ンアイオダイド、1.1'-ジエチル-4.4'-キノカルボシ アニンアイオダイド、3.3'-ジエチル-2.2'-オキサジ 40 カルボシアニンアイオダイド、1,3,3,1',2',3'-オキ サメチル-2,2'-インドジカルボシアニンアイオダイ ド、3,3'-ジエチル-2,2'-チアジカルボシアニンアイ オダイド、3.3'-ジエチル-9.11-ネオペンチレン-2. 2'-チアジカルボシアニンアイオダイド、3.3'-ジェ チルー2,2'-セレナジカルボシアニンアイオダイド、 1,3,3,1',3',3'-ヘキサメチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベン

ゾ)インドジカルボシアニンパークロレート、3,3'-ジエチル-2,2'-(6,7,6',7'-ジベンゾ)チアジカルボシ 50 アニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-(4,5,4', 5'-ジベンゾ)チアジカルボシアニンアイオダイド、 1,1'-ジエチル-11-クロロ-2,2'-キノジカルボシアニ ンプロマイド、1,1'-ジエチル-2,2'-キノジカルボシ アニンアイオダイド、1.1'ジエチル-11-クロロ-4.4'-キノジカルボシアニンアイオダイド、1,1'-ジエチ ルー4,4'-キノジカルボシアニンアイオダイドなどが あるがこの限りではない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項 (5)のキサンテン系色素の具体的な例としては、9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ3H-キサンテ ン-3-オン、9-(2'-カルボキシフェニル)-2,7-ジクロ ロー6-ヒドロキシー3H-キサンテン-3-オン、2.4.5.7-テトラブロモー9\*(2'ニカルボキシフェニル)-6-ヒドロ キシ-31-キサンテン-3-オンジナトリウム塩、4,5-ジ プロモー9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オンジナトリウム塩、4,5-ジョード-9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キサン

テン-3-オンジナトリウム塩、2.4.5.7-テトラブロ ル)-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オンジナトリウ ム塩、2,4,5.7-テトラヨード-9-(2'-カルボキシフェ ニル)-6-ヒドロキシ-31-キサンテン-3-オンジナトリ ウム塩、2,4,5,7-テトラヨード-3',4',5',6'-デトラク ロロー9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キ サンテン-3-オンジナトリウム塩、2-(6-アミノ-3-イ ミノ-3H-キサンテン-9-イル)ペンゾイックアシッド ヒドロクロリド、メチル-2.6-アミノ-3-イミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾエートヒドロクロリド、 エチル-2-(6-エチルアミノ-3-エチルイミノ-311-キサ ンテンー9イル)ベンゾエートヒドロクロリド、エチ ルー2-(6-エチルアミノ-3-エチルイミノ-2.7-ジメチル-311-キサンテン-9-イル)ベンゾエートヒドロクロリ ド、2-(6-メチルアミノ-3-メチルイミノ-31-キサン テン-9-イル)ベンゾイックアシッドパークロレー ト、2-(6-ジメチルアミノ-3-ジエチルイミノ-3H-キ サンテンーターイル)ベンゾイックアシッドヒドロクロ リド、2-16-ジメチルアミノ-3-ジメチルイミノ-311-

キサンテン-9-イル)ベンゾイックアシッドパークロ レート、エチルー(6-ジエチルアミノ-3-ジエチルイミ ノー31-キサンテン-9-イル)ベンゾエートヒドロクロ リド、2-(6-エチルアミノ-3-エチルイミノ-2,7ジメ チル-311-キサンテン-9-イル)ベンゾイックアシッド パークロレート、エチルー(6-エチルアミノ-3-エチル イミノ-2,7ジメチル-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾ エートパークロレート、2-(6-アセチルアミノ-3-ア セチルイミノ-311-キサンテン-9-イル)ペンゾイック アシッド、8-(2,4-ジスホニル)-2,3,5,6,11,2,14, 15-1H, 4H, 10H, 13H-オクタヒドロジキノリジノ(9,

1 2

9a,1-bc;9,9a,1-hi]キサンテリウムヒドロクロリ ド、スルホローダミンB、(9-(0-カルボキシフェニ ル)-6-(ジエチルアミノ)-3H-キサンテン-3-イリデン] ジエチルアンモニウムクロリド、等あるがこの限 りではない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項 (6)のピリリウム系色素の具体的な例としては、2-(3',4'-ジヒドロキシフェニル)-3,5,7-トリヒドロキ シ-1-ベンゾビリリウムパークロレート、7-ヒドロ

10

キシ-2-[3-(7-ヒドロキシ-2H-1-ベンゾピラン-2-イリ デン)-1-プロペニル] -1-ベンゾピリリウムパークロ レート、2-フェニル-4-[2-[4-[2-[(2-メチル-1-オキソ-2-プロペニル)オキシ] エトシキシ] フェニル] -エテニ ル]-1-ベンゾピリリウムパークロレート、2.4.6-ト リフェニルチオピリリウムパークロレート、2,6-ジ フェニルー4-(4-メチルフェニル)チオピリリウムバー クロレート、2,6-ビス (4-メチルフェニル)-4-(フェニ ルチオピリリウム)パークロレート、2,6-ジフェニ モ-3',4',5',6'-テトラクロロ-9-(2'-カルボキシフェニ 20 ル-4-(4-メトキシフェニル)チオピリリウムバークロ レート、2,6-ジフェニル-4-(4-(2-ヒドロキシエトキ シ) フェニル] チオピリリウムパークロレート、2.6-ビス(4-メトキシフェニル)-4-フェニルチオピリリウ ムパークロレート、2,6-ジフェニル-4-((3-メチル-2-ベンゾオキサゾリニルイデン)メチル] チオピリリウ ムパークロレート、2,6-ジフェニル-4-((3-メチル-2-ベンゾチアゾリニルイデン)メチル]チオピリリウム パークロレート、2,6-ジフェニル-4-(3-(1,3,3-トリ

30 プロペニル]チオピリリウムパークロレート、2.6-

メチル-2,3-ジヒドロ-1H-インドール-2-イリデン)-1-

ジフェニル-4-(3-(1,3,3-トリメチル-2,3-ジヒドロ-1出インドール-2-イリデン)-1-プロペニル] セレナビ リリウムパークロレート、4-(1'-ベンゾチオピラン-2'-イリデンメチル)-2-メチル-1-ベンゾチオピリリ ゥ

ムパークロレート、4-(4'-ジメチル-1'-ベンゾチオピ ラン-2'-イリデンメチル)-1-ベンゾチオピリリウム パークロレート、4-(4'6'-ジメチル-1'-ベンゾチオピ 40 ラン-2'-イリデンメチル)-6-メチル-1-ベンゾチオピ リリウムパークロレート、4-(4'-メトキシ-1'-ベンゾ チオピラン-2'-イリデンメチル)-2-メチル-1-ベンゾ チオピリリウムパークロレート、4-(4'-メチル-7'-メ トキシ-1'-ベンゾピラン-2'-イリデンメチル)-7-メト キシ-1-ベンゾチオピリリウムパークロレート、4-(4'-メチル-7'-メトキシ-1'-ベンゾピラン-2'-イリ デンメチル)-2-メチルチオ-7-メトキシ-1-ベンゾピリ リウムパークロレート、4-(4'7'-ジメトキシ-1'-ペン

50 キシ-1-ベンゾチオピリリウムパークロレート、4-

ゾチオピラン-2'-イリデンメチル)-2-メチル-7-メト

(4'-メトキシ-7'-クロロ-1'-ベンゾチオピラン-2'-イリデンメチル)-2-メチル-7-クロロ-1-ベンゾピリリウム

パークロレート、4-(4'-ジメチルアミノフェニル)-2-(4-メトキシフェニル-6-フェニルピリリウムパークロレート、4,6-ジェニル-2-(4-エトキシフェニル)チオピリリウムパラ-トルエンスルホネート、2-(4-メトキシフェニル)-6-フェニル-4-(パラートリル)-ピリリウムテトラフルオロボレート等があるがこの限りではない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項 (7)のオキソベンゾアントラセンの具体的な例としては、4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ(d,e)アントラセンナトリウム、4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ(d,e)アントラセン12-オラート、13-クロル-4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ(d,e)アントラセン、ナトリウム、13-クロル-4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ(d,e)アントラセン、13-クロル-4-オキソ-10-メチル-12-ピロリメチル-N-フェニルカルバミルオキシ)-4H-ベンゾ(d,e)アントラセン、4-オキソ-10-メチル-12-ピロリジニル-4H-ベンゾ(d,e)アントラセン、10-ブトキシカルボニル-4-オキソ-4H-ベンゾ(d,e)アントラセン、ナトリウム10-ブトキシカルボニル-4-オキソ-

4H-ベンゾ(d,e)アントラセン12-オラート、ナトリウム、12-ブトキシカルボニル-13-クロロ4H-オキソ-4H-ベンゾ(d,e)アントラセン12-オラートなどがあるがこの限りではない。

また、本発明の有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(8)の第3級ジアミン系化合物の具体的な例としては、1,1-ビス(4-ジ-パラ-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、1,1-ビス(4-ジ-パラ-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン、N,N,N',N'-テトラ-パラ-トリルー4,4'-ジアミノビフェニル、N,N,N',N'-テトラフェニルー4,4'-ジアミノビフェニル、4-(ジ-パラ-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-パラ-トリルアミノ)-スチリル]ス

チルベン、ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン、4,4'-ビス(ビフェニルアミノ)クワドリフェニル、等があるがこの限りではない。

本発明の有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷 輸送性材料として用いられる請求項(9)のフタロシ アニン化合物の具体的な例としては、フタロシア ニン、マグネシウムフタロシアニン、クロムフタ

ロシアニン、鉄フタロシアニン、亜鉛フタロシア ニン、ニッケルフタロシアニン、銅フタロシアニ ン、ガリウムフタロシアニン、鉛フタロシアニ ン、ヘキサデカヒドロフタロシアニン、マグネシ 14

ウムヘキサデカヒドロフタロシアニン、ニッケル ヘキサデカヒドロフタロシアニン、コバルトへキ サデカヒドロフタロシアニン、銅ヘキサデカヒド ロフタロシアニン、テトラフェニルフタロシアニ ン、マンガンテトラフェニルフタロシアニン、コ バルトテトラフェニルフタロシアニン、鉛テトラ フェニルフタロシアニン、スズテトラフェニルフ タロシアニン、パラジウムテトラフェニルフタロ シアニン、テトラキス-タ-シャリ-ブチルフタロシア コン、フタロシアニンスルボン酸ナトリウム塩等 があるがこの限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(10)のナフタルイミド系化合物の具体的な例としては、N-メチル-4-アミノナフタルイミド、N-エチル-4-アミノナフタルイミド、N-プロビル-4-アミノナフタルイミド、N-プロビル-4-アミノナフタルイミド、N-n-ブ

チルー4-アミノナフタルイミド、4-アセチルアミノナフタルイミド、N-メチルー4-アセチルアミノナフタルイミド、N-エチルー4-アセチルアミノナフタルイミド、N-プロピルー4-アセチルアミノナフタルイミド、N-ホーブチルー4-メトキシナフタルイミド、N-エチルー4-メトキシナフタルイミド、N-エチルー4-メトキシナフタルイミド、N-エチルー4-メトキシナフタルイミド、N-エチルー4-メトキシナフタルイミド、N-エチルー4-エトキシナフタルイミド、N-エチルー4-エトキシナフタルイミド、N-エチルー4-エトキシナフタルイミド、N-ローブチルー4-エトキシナフタルイミド、N-ローブチルー4-エトキシナフタルイミド、N-ローブチルー4-エトキシナフタルイミド、N-ローブチルー4-エトキシナフタルイミド、130 N-(2,4-キシリル)-4-アミノナフタルイミドなどがあるがこの限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(11)のキノリノール金属錯体の具体的な例としては、トリス(8-ヒドロキシキノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)マグネシウム、トリス(8-キノリノール)・ロス(5-キノリノール)・亜鉛、トリス(5-キノリノール)・亜鉛、トリス(5-

メチル-8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリ 40 ノールリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノール) ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノール)カリシウ ムなどがあるがこの限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(12)の第3級アミン誘導体の具体的な例としては、4,4'-ジメチル-4"-(2,2-ジフェニル)ビニル)トリフェニルアミン、4,4'-ジメトキシ-4"-(2-(1-ナフェチル)ビニル)トリフェニルアミン、N,N-ジフェニルー4-(α-スチリル)-1-ナフチルアミ

50 ン、4,4'-ジメチル-4"-(2-(4-クロロフェニル) ピニル)

トリフェニルアミン、9-(2-(4-N, N-ジエチルアミノ) フェニル)ビニル)アントラセンなどがあるがこの限 りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(13)のスチリル系化合物の具体的な例としては、2-(p-ジフェニルアミノスチリル)ナフト[1,2-d]チアゾール、2-(p-ジメチルアミノスチリル)ナフト[1,2-d]チアゾール、2-(p-ジフェニルアミノスチリル)ペンズオキサゾール、2-

(P-ジメチルアミノスチリル)ベンズオキサゾール、2-(P-ジフェニルアミノスチリル)ベンズオキサゾール、2-(P-ジフェニルアミノスチリル)キノリン、2-(P-ジメチルアミノスチリル)キノリン、4-(P-ジスチリル)キノリン、4-(P-ジメチルアミノスチリル)キノリン、2-(P-ジフェニルアミノスチリル)ベンゾチアゾール、2-(P-ジフェニルアミノスチリル) -3,3-ジメチル-3H-インドール、2-(P-ジメチルアミノスチリル) -3,3-ジメチル-3H-インドールなどがあるがこの限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(14)のジフェノキノン誘導体の具体的な例としては、2,6-ジメチルー2',6'-ジーセーブチルジフェノキノン、2,2',6,6'ーテトラーセーブチルジフェノキノン、2,2',6,6'ーテトラメチルジフェノキノンなどがあるが、この限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(15)の3,9-ペリレンジカルボン酸エステルの具体的な例として3,9-ペリレンジカルボン酸ジフェニルエステル、3,9-ペリレンジ

カルボン酸ジメチルエステル、3,9~ペリレンジカルボン酸-ジ-(p-ジメトキシフェニル)エステル、3,9~ペリレンジカルボン酸-ジ-(o-ジメトキシフェニル)エステル、3,9~ペリレンジカルボン酸-ジ-(p-ジメトキシフェニル)エステル、3,9~ペリレンジカルボン酸-ジー(p-ジメチルアミノフェニル)エステル、3,9~ペリレンジカルボン酸-ジ-(p-ジエチルアミノフェニル)エステルなどがあるがこの限りではない。(実施例)

以下、本発明の実施例について詳細に説明する。

#### (実施例1)

有機発光体薄膜層の有機発光材料として2,3,6,7-テトラヒドロ-11-オキソー1H,5H,11H-(1)ベンゾピラノ(6,7,8-ij)-キノリジン-10-カルボン酸を用い、有機電荷輸送性材料として1,1-ビス-(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用いた。第1図に示すように、ガラス基板11上に1T0透明電極12を形成してから、上記の有機発光材料が有機

16

発光体薄膜層中に5モル%含まれるように有機電荷

輸送性材料とともに10-7Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層14を1000Å形成した。最後に背面金属電極15としてInを電子ビーム蒸着法で1500Å形成して有機薄膜EL素子を作製した。

この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したと

ころ、約7Vの直流電圧の印加で約500cd/m²の明るい青緑色発光が得られた。従来の素子に比べ、発 10 光輝度・効率が1.5から2倍改善されている。この有機薄膜EL素子を電流密度0.5m4/cm²の状態でエージング試験をしたところ、輝度半減時間は300時間以上であった。従来の素子では100から300時間であった。

#### (実施例2)

有機発光体薄膜層の発光材料として4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(ロジメチルアミノスチリル)-4H-ピランを用いた以外は実施例1と同様にして素子を作製し、約200cd/m²の明るい橙色発光が得ら20れた。

#### (実施例3)

有機発光体薄膜層の発光材料として1,1'-ジエチル-2,2'-キノシアニンアイオダイドを用いた以外は実施例1と同様にして素子を作製した。約7Vの直流電圧の印加で約100cd/m²の明るい黄色発光が得られた。この素子を電流密度0.5mA/cm²の状態でエージング試験をしたところ輝度半減時間は約300時間であった。

#### 30 (実施例4)

有機発光体薄膜層の発光材料として、3,3'-ジェチル-2,2'-チアカルボシアニンアイオダイドを用いた以外は実施例1と同様にして素子を作製し、約150cd/m²の明るい黄色発光が得られた。 (実施例5)

有機発光体薄膜層14の有機発光材料として、2-(6-ジエチルアミノ-3-ジエチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)-ベンゾイックアシッドヒドロクロリドを用いた以外は実施例1と同様にして素子を作製し40 た。

この案子の発光特性を乾燥窒素中で測定したことろ、約10Vの直流電圧の印加で約120cd/m²の明る

い黄色発光が得られた。従来の素子に比で発光輝度・効率が約1.2倍改善されている。 (実施例6)

有機発光体薄膜層の発光材料として、エチル-2-(6-エチルアミノ-3-エチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾエートヒドロクロリドを用いた以外は 50 実施例1と同様にして素子を作製し、約15Vの直流 17

電圧の印加で約100cd/m²の明るい黄色発光が得られた。

#### (実施例7)

有機発光体薄膜層14の機発光材料として、2-13', 4'-ジヒドロキシフェニル)-3,5,7-トリヒドロキシ-1-ベンゾビリリウムバークロレートを用いた。第1図に示すようにガラス基板11に170透明電極12を形成してから上記の有機発光材料が有機発光体薄膜層中に5モル%含まれるように有機電荷輸送性材料ととみに10-7 Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層14を1000人形成した。最後に背面金属電極15として、Inを電子ビーム蒸着法で1500人形成して有機薄膜癿素子を作製した。この素子の発光特性を

乾燥窒素中で測定したところ約10Vの直流電圧の印加で約120cd/m²の明るい赤色発光が得られた。 (実施例8)

有機発光体薄膜層14の有機発光材料として、4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ[d,e]アントラセンを 用いた。これ以外は、実施例7と同様にして有機薄膜LL素子を作製した。この素子の発光特性を乾燥 窒素中で測定したところ約10Vの直流電圧の印加で 約120cd/㎡の明るい発光が得られた。発光が得ら れた。

#### (実施例9)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料として、無金属フタロシアニンを用い、有機発光材料として、2-(6-ジメチルアミノ-3-ジエチルイミノ-3-サンテン-9-イル)-ベンゾイックアシッドヒドロクロリドを用いた。

第1図に示すように、ガラス基板11にITO透明電極12を形成してから、上記の有機発光材料が有機発光体薄膜層中に5モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10-7Torrの真空中で共素着し

て有機発光体薄膜層14を1000Å形成した。最後に背面金属電極15として、Inを電子ビーム蒸着法で1500Å形成して有機薄膜EL素子を作製した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ約10Vの直流電圧の印加で約120cd/m²の明るい黄色発光が得られた。従来の素子に比べ発光輝度・効率が約1.2倍改善されている。

#### (実施例10)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料として、コバルトフタロシアニンを用いた以外は実施例9と同様にして素子を作製し、約15Vの直流電圧の印加で約100cd/m²の明るい黄色発光が得られた。

#### (実施例11)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料とし

18

て4-(ジーパラートリルアミノ-4'(4-(ジーパラートリルアミノ)スチリル] スチルベンを用い有機発光材料として4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピランを用いた。第1 図に示すようにガラス基板11に1TO透明電極12を形成して

から上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10-7Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層10 14を1000Å形成した。最後に背面電極15としてInを電子ビーム蒸着法で1500Å形成して有機薄膜LL素子を作製した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ約15Vの直流電圧の印加で約100の明るい橙色発光が得られた。

#### (実施例12)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料としてN-(2,4-キシリル)-4-アミノナフタルイミドを用い、有機発光材料として4-(ジシアノミチレン)-2-メチルー6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピランを用20 いた。第2図に示すようにガラス基板21にITO透明電極22を形成してから、正孔注入層として、1,1-ビス(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用い10-7Torrの真空蒸着で形成した。次に上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10-7Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層24を

700Å形成した。最後に背面電極25としてMgIn合金 (In10at%)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、素30 子を作成した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ、約13Vの直流電圧の印加で約100cd/m²の橙色発光が得られた。 (実施例13)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料としてトリス(8-ヒドロキシキノリノール)アルミニウムを用い、有機発光材料として、2,3,6,7-テトラヒドローケメチルー11-オキソー1H,5H,11H-(1)ベンゾピラノ(6,7,8-ij)-キノリジンをもちいた。第2図に示すようにガラス基板21にITO透明電極22を形成してから、正孔注入層として1,1-ピス(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用い10-7Torrの真空蒸着で形成した。次に上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10-7Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層24を500Å形成した。最後に、背面電極25としてMgIn合金(In10at%)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、素子を作成した。この素

子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ、約50 20Vの直流電圧の印加で約80cd/m²の資色の発光が

得られた。 (実施例14)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料として2-(p-ジメチルアミノスチリル)-3,3-ジメチル-3-インドールを用い、有機発光材料として、-4(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピランをもちいた。第3図に示すようにガラス基板31に170透明電極23を形成してから、上記の有機発光材料を有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10-7Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層34を500Å形成した。次に有機電子注入層36として2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"ニピフェニル)-1,3,4-オキサジアゾールを用い、10-6Torrの真空中で300Å蒸着した。最後に、背面電極35として旭In合金(In10at %)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、素子を作成した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定し

たところ、約18Vの直流電圧の印加で約100cd/㎡の 橙色の発光が得られた。

(実施例15)

有機発光体薄膜層の有機電荷輸送性材料として 4,4'-ジメチルー(4"(2,2-ジフェニル) ビニル) トリフェ ニルアミンを用い、有機発光材料として、4-(ジシ アノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリ ル)-4H-ピランをもちいた。第4図に示すようにガラ ス基板41にITO透明電極42を形成してから、正孔注 入層43として1,1-ビス(4-N,N-ジトリルアミノフェ ニル)シクロヘキサンを用い、10-7Torrの真空蒸着 で形成した。次に上記の有機発光材料が有機発光 体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性 材料とともに10<sup>+</sup>Torrの真空中で共蒸着して有機 発光体薄膜層44を500人形成した。次に有機電子注 入層36として2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビ フェニル)-1.3,4-オキサジアゾールを用い、10-6 Torrの真空中で300A蒸着した。最後に、背面電極 35としてNgIn合金(In10at%)を電子ピーム蒸着で 1500人形成して、素子を作成した。この素子の発光

特性を乾燥窒素中で測定したところ、約20Vの直流 電圧の印加で約100cd/m²の橙色の発光が得られた。 (実施例16)

有機発光体薄膜層の有機電荷輸送性材料として 2.6-ジメチルー2',6'-ジ-t-ブチルジフェニキノンを用い、有機発光材料として、N,N-(ジ-1,4-t-ブチル)3,

4,9,10-ペリレンテトラカルボキシルイミドを用いた。第2図に示すようにガラス基板21にITO透明電極22を形成してから、正孔注入層23として1,1-ピス(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用い、10-7Torrの真空蒸着で形成した。次に上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10-7Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層24を700A形成した。最後に、背面電極25としてMgIn合金(In10at%)を電子ビーム蒸着で1500A形成して、素子を作成した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ、約15Vの直流電圧の印加で約50cd/㎡の赤色の発光が得られた。(実施例17)

20

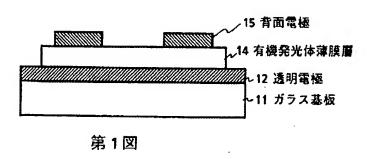
有機発光体薄膜層の有機電荷輸送性材料として 3,5ペリレンジカルボン酸ジフェニルエステルを用 い、有機発光材料として、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチル)-4H-ピランを用 20 いた。第2図に示すようにガラス基板21にITO透明 電極22を形成してから、正孔注入層23として1.1-ビ ス(4-N, N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサン を用い、 $10^{-7}$  Torrの真空蒸着で形成した。次に上 記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含 まれるように有機電荷輸送性材料とともに10-7Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層24を 500A形成した。最後に、背面電極25としてMgIn合 金(In10at%)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、 素子を作成した。この素子の発光特性を乾燥窒素 30 中で測定したところ、約20Vの直流電圧の印加で約 120cd/m²の赤色の発光が得られた。 (発明の効果)

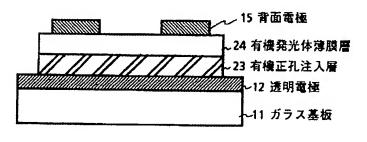
以上説明したように本発明により、青から赤に 至る高輝度な有機薄膜L素子のフルカラー化を実

現でき、低電圧駆動の薄膜発光体としてきわめて 有効であり、その工業的価値は高い。

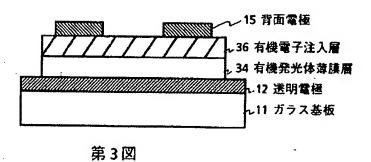
【図面の簡単な説明】

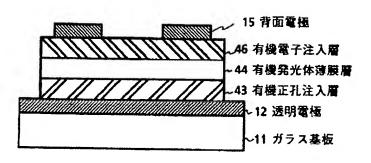
第1図から第4図は本発明の実施例に用いた有機 40 薄膜に素子の概略断面図、第5図は従来より知られ ている有機薄膜に素子の概略断面図である。 11,51…ガラス基板、12,25…ITO透明電極、23,43, 53…有機正孔注入層、14,24,34,44,54…有機発光体 薄膜層、15,55…背面電極、36,46…有機電子注入層



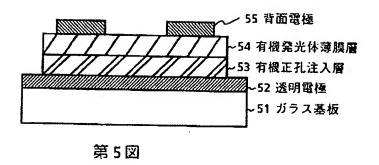


第2図





第4図



### フロントページの続き

(31) 優先權主張番号 特願平2-306556

(32) 優先日 平

平2(1990)11月13日

(33)優先権主張国 日本(JP)

(31) 優先権主張番号 特願平2-279183

(32) 優先日 平2(1990)10月19日

(33)優先権主張国 日本(JP)

THIS PAGE BLANK (USPTO)